

气溶胶⁷Be 活度浓度的测量方法及其应用

戴科荐, 祝 莉*, 姜让荣

(浙江省辐射环境监测站, 浙江 杭州 310012)

摘要:用三层滤膜法测定⁷Be 气溶胶的过滤效率,并对测量结果进行衰变修正,得到过滤效率为 85.7%。同时,分析研究杭州附近气溶胶⁷Be 活度浓度的年变化规律,得出主要原因是季节性降雨。

关键词:气溶胶;⁷Be 活度浓度;过滤效率;衰变修正;季节性变化规律

中图分类号:TL11 **文献标志码:**A **文章编号:**1000-6931(2011)04-0487-04

Measurement of ⁷Be Aerosol Activity Concentration and Its Application

DAI Ke-jian, ZHU Li*, JIANG Rang-rong

(Zhejiang Radiation Environmental Monitoring Station, Hangzhou 310012, China)

Abstract: The filtration efficiency of ⁷Be aerosol was measured by the method of three-layer membrane. The filtration efficiency of ⁷Be aerosol is 85.7% with amendment on decay effect. The annual change regularity of ⁷Be aerosol activity concentration around Hangzhou area was analyzed, and it is concluded that the main reason is the seasonal rainfall.

Key words: aerosol; ⁷Be activity concentration; filtration efficiency; decay amendment; seasonal variation

⁷Be 是 4 种主要的宇生放射性核素之一,它发射 477.6 keV 的 γ 射线,具有 53.3 d 的半衰期,衰变方式为轨道电子俘获^[1],全球储存量达 3.7×10^{16} Bq^[2-4]。在空气样品的 γ 谱中可观察到较高的⁷Be 能峰,在叶类植物、雨水和部分动物及土壤样品中也可观察到它的存在。

在大气样品的测量中,如何确定气溶胶⁷Be 核素的收集效率,是一非常关键的技术问题。

按照通常的方法,需有一已知浓度且体积

巨大、均匀分布于空气中的气溶胶⁷Be 源或其它可替代的源。通过一定的采样条件采集这一源中的空气,根据测量这一样品得到的核素浓度与源的已知浓度相比,才能给出收集效率。这一方法不但操作复杂,且对源的要求很高,如源的⁷Be 浓度的均匀性和稳定性等。国内无这样的可供使用的实验室;国外也未见关于如何解决收集效率问题的报道。更为严重的是,⁷Be 气溶胶是⁷Be 核素在高空产生后逐步形成并沉

降到地表大气中的,气溶胶的组成和粒径很难确定,因此,它在采样中的过滤效率便无法用标准源刻度,只能用现场试验的方法来确定。三层滤膜法是测定 ^7Be 气溶胶采样的过滤效率的很好方法,但对测量结果应进行衰变修正。

1 实验方法

1.1 过滤效率

地表空气中的 ^7Be 气溶胶活度浓度较低,约为 mBq/m^3 量级。为了保证实验精度,需采集约 10^4 m^3 的空气。三层滤膜法采样时的空气流量和换样方法与一般的常规采样相同,抽气流量为 $1\text{ m}^3/\text{min}$,每48 h更换1次滤膜,连续采样8 d;不同的是在采样器的进气口安装了3层滤膜。采样结束后,将每层的4张滤膜封装成1个样品,直接在HPGe γ 谱仪上测量^[5]。设大气中 ^7Be 气溶胶的活度浓度为 C_0 ,第1层滤膜的收集效率为 η_1 ;由于未过滤时大气中存在很多大粒径的气溶胶颗粒,经1次过滤后,这些颗粒已被去除,假定通过第2、3层滤膜的气溶胶组成基本相同,收集效率均为 η_2 ;经衰变修正后3层滤膜计算的 ^7Be 活度浓度分别为 C_1 、 C_2 、 C_3 ,则可得到:

$$C_1 = C_0 \eta_1 \quad (1)$$

$$C_2 = (C_0 - C_1) \eta_2 \quad (2)$$

$$C_3 = (C_0 - C_1 - C_2) \eta_2 \quad (3)$$

解方程得:

$$C_0 = C_1 + C_2^2 / (C_2 - C_3) \quad (4)$$

$$\eta_1 = C_1 / [C_1 + C_2^2 / (C_2 - C_3)] \quad (5)$$

$$\eta_2 = 1 - C_3 / C_2 \quad (6)$$

根据测得的 C_1 、 C_2 、 C_3 结果,可得到 C_0 和 η_1 的值。

1.2 衰变修正

衰变修正可分为采样时间的衰变修正、待测时间的衰变修正和测量时间的衰变修正。

1) 采样时间的衰变修正

采样时间的衰变修正可由下式计算^[6]:

$$dN/dt_1 = P - \lambda N \quad (7)$$

$$N(t_1) = P(1 - e^{-\lambda t_1}) / \lambda \quad (8)$$

$$A(t_1) = \lambda N(t_1) = P(1 - e^{-\lambda t_1}) \quad (9)$$

式中: t_1 为采样时间,8 d; N 为采样结束时某层滤膜的4张滤膜中 ^7Be 核素的总数量; λ 为 ^7Be 的衰变常量; P 为每秒在相应各层滤膜中收集

到的 ^7Be 核数量,由于采样流量为 $1\text{ m}^3/\text{min}$,因此 P 分别对应式(1)、(2)、(3)中的 $C_1/60\lambda$ 、 $C_2/60\lambda$ 和 $C_3/60\lambda$; $A(t_1)$ 为采样结束时相应各层滤膜中 ^7Be 的活度。

2) 待测时间的衰变修正

待测时间的衰变修正可表示为:

$$A(t_2) = A(t_1) e^{-\lambda t_2} \quad (10)$$

其中: t_2 为从采样结束到样品测量之间的等待时间; $A(t_2)$ 为测量开始时相应各层滤膜中的 ^7Be 活度。

3) 测量时间的衰变修正

测量时间的衰变修正可通过下式计算:

$$M = A(t_2) \epsilon \theta (1 - e^{-\lambda t_3}) / \lambda \quad (11)$$

其中: M 为样品在 γ 谱仪测量中得到的计数; t_3 为样品测量时间; ϵ 为 γ 谱仪对477.6 keV γ 射线的探测效率; θ 为 ^7Be 的477.6 keV γ 射线发射几率。

很显然,测量中得到的计数应等于样品在测量期间的 ^7Be 衰变数与发射几率和探测效率的乘积。而衰变数应为测量前后样品中 ^7Be 核的数量之差。

根据测量所得的计数 M 和以上的各计算式,通过逆向计算即可得到过滤效率 η_1 、 η_2 和大气中气溶胶 ^7Be 的活度浓度 C_0 。

2 结果与讨论

本次实验按照上述采样条件在不同时间进行了4次实际测定。采样使用遵义化工厂生产的LQ-15玻璃纤维滤膜,得到的过滤效率 η_1 、 η_2 和大气中气溶胶 ^7Be 的活度浓度 C_0 列于表1。第1层滤膜的过滤效率即为常规采样时的过滤效率^[5]。

表1 实验测定的气溶胶 ^7Be 活度浓度(空气)和滤膜的收集效率

Table 1 Experimental determination of activity concentration of ^7Be aerosol (air) and collection efficiency of membranes

次数	$C_0/(\text{mBq} \cdot \text{m}^{-3})$	$\eta_1/\%$	$\eta_2/\%$
1	52.4	84.1	71.1
2	87.6	83.2	67.5
3	80.1	87.8	64.0
4	69.2	87.7	58.4
平均(1s)		85.7(1.2%)	65.2(2.7%)

由表 1 可见,收集效率平均为 85.7%,标准偏差(1s)为 1.2%。实验次数虽较少,实际的效率偏差会稍大些,但这一离散性已能够满足⁷Be 调查的要求。应看到,离散性不仅由采样误差和测量误差产生,还与滤膜的质量有关。如果在采样前能够对滤膜的厚度进行控制,所得到的收集效率的离散性还可更小。这一收集效率测定方法在理论上是合理的,实际测定结果也令人满意,它不需任何附加设备,直接解决了空气中⁷Be 采样的收集效率问题,在其它的相似采样中原则上也可参照使用。

表 1 表明,第 2 层滤膜的过滤效率较第 1 层的明显低,仅为其 0.76,可推断,这一差异主要是由空气中存在许多大颗粒的气溶胶造成的。由于大颗粒气溶胶已被第 1 层滤膜过滤,第 2 层与第 3 层滤膜间的过滤效率应较为接近。另外,在 4 次测定中,第 2 层(也是第 3 层)滤膜的平均过滤效率的标准差为 2.7%,单次测定的标准差为 5.4%,明显大于第 1 层滤膜。如果采用 4 层滤膜法测定过滤效率,由于计数率的降低,得到的第 3 层(也是第 4 层)滤膜过滤效率的离散性还会更大,由此计算的第 1 层滤膜的过滤效率的准确性不一定优于三层滤膜法得到的结果。

利用这一方法得到的过滤效率和衰变修正公式,对杭州附近大气中的气溶胶⁷Be 活度浓度进行了实际测量调查^[5]。本项目共布设 3 个采样点,其中,1 号点和 2 号点在杭州外围,3 号点在杭州市内。3 个采样点每月同时采样 1 次,经衰变校正和收集效率校正后的结果列于表 2,同表列出该区域气象站提供的对应月份的降雨量。

由表 2 可见,全年所测得的地表空气中气溶胶⁷Be 活度浓度在 1.83~10.9 mBq/m³之间。其中,1、2 号点的全年平均值十分接近。杭州市内采样点的全年平均值较 1、2 号点的稍低,是否因杭州大城市的气候环境影响了气溶胶⁷Be 的沉降尚待研究。

表 2 显示,在本次调查中,10、11、12 月份(晚秋初冬)地表大气的⁷Be 活度浓度最大,其中尤以 10 月份最高,1、3、9 月份的活度浓度也较高,2、6、7 月份的活度浓度最低,4、5 月份的活度浓度接近于全年的平均值。

表 2 调查中测得的地表大气中气溶胶⁷Be 活度浓度及月降雨量

Table 2 Survey measured ⁷Be surface activity concentrations of atmospheric aerosols and monthly rainfall

月份	⁷ Be 活度浓度/(mBq·m ⁻³)				降雨量/mm
	1 号点	2 号点	3 号点	平均值	
1	6.09	6.49	6.12	6.23	57.2
2	2.38	2.45	2.18	2.34	168
3	7.23	6.77	7.12	7.03	61.8
4	6.37	5.33	4.08	5.26	109
5	5.45	4.82	6.33	5.53	104
6	2.36	2.41	1.83	2.19	200
7	2.19	2.38	2.43	2.33	301
8	3.93	4.88	3.01	3.94	200
9	6.8	6.53	5.84	6.39	183
10	8.83	10.9	7.97	9.22	21.7
11	7.2	6.77	6.71	6.89	40.5
12	8.48	7.33	7.07	7.63	48.1
	(5.61)	(5.58)	(5.06)	(5.41)	(125)

注:括号内为平均值

文献[4,7]表明,雨水中的⁷Be 活度浓度约为 700 Bq/m³,为空气浓度的 10⁵ 倍,而雨水中的⁷Be 来自于空气。不难想象,降水过程可明显降低空气中的⁷Be 活度浓度。由于空气的流动性很大,某一地点的⁷Be 活度浓度不仅与其采样时和采样前一段时间内的降水过程、云层高度、大气对流等气象条件有关,且与其周围较大区域内的降水、风向、风速等条件有关。其减少的程度由降水对被采集空气的冲洗效果和影响⁷Be 的沉降、扩散、迁移等诸多因素所决定。

在本次调查中,计算所得的 3 个采样点各月的⁷Be 活度浓度与月降雨量的相关系数分别为 -0.85、-0.80、-0.84,所有点位全年的相关系数为 -0.85。因此,无论从各采样点的全年度,还是所有点位的全年度,各月的⁷Be 活度浓度与降雨量在统计学上均为明显的负相关。

文献[4,8]报导,德国大气中的⁷Be 活度浓度春天最高、晚秋最低,原因是平流层中的⁷Be 核素在晚秋季节通过亚热带对流层顶部间隙的

水平转移达到最大,并在春季产生地表空气的最大沉降率。本次调查的结果是,杭州附近的变化规律与之明显不同,表现为秋冬最大,夏秋最低,该地区的季节性降雨是造成这一规律的主要原因。

3 结论

1) 用三层滤膜法可很好地测定气溶胶⁷Be的收集效率,且方法简单,结果可靠,不需任何附加设备。

2) 对于测量结果应进行衰变修正。采样时间、待测时间、测量时间衰变修正的方法分别为: $A(t_1) = P(1 - e^{-\lambda_1 t_1})$ 、 $A(t_2) = A(t_1)e^{-\lambda_2 t_2}$ 、 $M = A(t_2)\epsilon\theta(1 - e^{-\lambda_3 t_3})/\lambda$ 。

3) 杭州附近气溶胶⁷Be活度浓度测量结果表明,其1年中不同月份的活度浓度在1.83~10.9 mBq/m³之间,年平均为5.41 mBq/m³,并呈现秋冬最高、春天次之、初夏居中、夏秋最低的逐步下降的变化规律。分析表明,季节性降雨与⁷Be活度浓度呈明显的负相关,是形成这一规律的主要原因。与UNSCEAR报导的德国春天最高、晚秋最低的季节性变化有明显差别。

向参加采样工作的所有人员表示感谢。

参考文献:

- [1] BROWNE E, FIRESTONE R B. Table of radioactive isotopes[M]. New York: John Wiley & Sons, 1986.
- [2] Sources and effects of ionizing radiation [R]. New York: United Nations Scientific Committee on Effects of Atomic Radiation, 1977.
- [3] Ionizing radiation: Sources and biological effects of radiation[R]. New York: United Nations Scientific Committee on Effects of Atomic Radiation, 1982.
- [4] LAL D, PETERS B. Cosmic ray produced radioactivity on the earth[M]. New York: Springer Verlag, 1967.
- [5] JIANG Rangrong. ⁷Be content and its seasonal variation in the ground air around Hangzhou area [J]. Nuclear Science and Techniques, 1999, 10: 230-232.
- [6] 卢希庭. 原子核物理[M]. 北京:原子能出版社, 1981.
- [7] AURAND K L, RUHLE H. Vorkommen naturlicher radionuklide in wasser [M]. Stuttgart: Georg Thieme Verlag, 1974.
- [8] KOLB W. Radionuclide concentrations in ground level air from 1971 to 1973 in Brunswick and Tromso [R]. Brunschweig: Physikalisch-technische Bundesanstalt, 1974.